

English translation of Claim 1 of JP-A-51-136735

A thermoplastic resin composition characterized by comprising (a) 89-20 % by weight of a polyolefin, (b) 1-20 % by weight of a thenthetic rubber or natural rubber and (c) 10-60 % by weight of a powdery talc filler having an average particle size of 1-10  $\mu$ .



JP-A-51-136735

① 日本国特許庁

## 公開特許公報

(2000)

昭和50年5月22日

特許庁長官 斎藤 孝雄 殿

## 1. 発明の名称

熱可塑性樹脂組成物

## 2. 発明者

武蔵野大学 市 旗 渡 4丁目6-8  
旗 田 博 義

ほか3名

## 3. 特許出願人

東京都千代田区郡が岡三丁目2番5号

(312) 三井東洋化学株式会社

代表者 木 吉 俊 雄

## 4. 代理人

〒156 東京都世田谷区宮坂一丁目28番13号

弁護士(7078) 横 田 晋

電話 03-429-6701

ほか1名

## 5. 添付書類の目録

- |             |    |
|-------------|----|
| (1) 明 細 書   | 1通 |
| (2) 願 書 副 本 | 1紙 |
| (3) 図 面     | 1通 |
| (4) 委 任 状   | 1通 |



明 細 書

## 1. 発明の名称

熱可塑性樹脂組成物

## 2. 特許請求の範囲

(a)ポリオレフィン89〜20重量%, (b)合成ゴムまたは天然ゴム1〜20重量%, (c)平均粒径1〜10μmの粉末状タルク系充填材10〜60重量%, とからなることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物。

## 3. 発明の詳細な説明

本発明は射出成形材料としてポリオレフィンに無機充填材及び衝撃強度改良材を配合した組成物に関する。

更に詳しくは、ポリオレフィンに粉末状タルク系充填材と合成ゴムまたは天然ゴムを配合した成形材料組成物に関し、その目的とする所は、ポリオレフィンの高い化学的安定性及び機械的性質を失うことなく、成形性及び機械的性質の改良された、特に、成形収縮率が小さく、衝撃強度及び剛

①特開昭 51 136735

④公開日 昭51. (1976) 11. 26

②特願昭 50 - 60207

②出願日 昭50. (1975) 5. 22

審査請求 未請求 (全5頁)

序内整理番号

7016 48

7202 48

## ⑤日本分類

2501C111.81

2501A211.2

⑤Int.Cl<sup>2</sup>

C08L 23/02

C08K 3/34

CC08L 23/02

C08L 7/00

C08L 9/06

C08L 23/16

性の優れたポリオレフィン成形材料組成物を提供することにある。

ポリオレフィンには優れた引張り強度、剛性度、耐熱性を有し、樹脂の構造に基づく優れた電気的性質や化学安定性を持つ成形材料として、多量に消費されている。しかしながら、射出成形により、機械部品等を成形する場合、その成形収縮率が大きいという欠点のため寸法精度が悪く、ヒケやソリ等の好ましくない現象が生ずる。従つて、寸法精度が良好で、高い剛性度、高い衝撃強度を要求される分野にはABSの様な樹脂が多量に使用されており、該ABSより廉価なポリオレフィンはその優れた特性にもかかわらず、使用困難とされている。

従来、ポリオレフィンに無機充填材を配合して、成形収縮率、剛性を改良することは良く知られている。しかし無機充填材をポリオレフィンに適用するとき、衝撃強度が著しく低下する場合が多い。例えば、成形収縮改良効果の比較的大きいタルク系充填材を適用すると衝撃強度は著しく低下する。

1字加入

一方比較的衝撃強度の低く少ない重質炭酸カルシウムを使用した場合、成形収縮率は全く満足できるものではない。

従つて、衝撃強度を低下させず耐性等の機械的強度を改良する試みがなされている。例えば、充填材を表面処理して用いたり、特殊な添加剤を用いて、樹脂と充填材との親和力を高め、あるいは充填材と樹脂とを化学的に結合させる方法が紹介されているが、これらの方法はどれも工程が煩雑であり、経済的にも通用樹脂としては不適当である。

本発明者等は、ポリオレフィンを改良し、かかる樹脂を提供する方法として、既述発明の結果、ポリオレフィンに、(a)前記樹脂の母体を含むタルク系充填材と合成ゴムまたは天然ゴムを配合することにより、高成形収縮率と、高衝撃強さ、高耐性及び熱変形温度を有することを見出して本発明を創案した。

本発明は、(a)ポリオレフィン89〜20重量部、(b)合成ゴムまたは天然ゴム1〜20重量部、(c)平均粒径1〜10 $\mu$ の粉末状タルク系充填材10〜

衝撃強度等の優れたポリオレフィン成形材料組成物を得ることに成功した。本発明の組成物は、構成成分を単にブレンドするだけで、すぐ乾状成型機にかけることができ、表面処理や配合上等での煩雑な操作を必要とせず、コスト的にも有利である。

本発明に用いられるポリオレフィンとは、広く成形材料として用いられている、ポリエチレン、高結晶性ポリプロピレン、エチレン30重量部以下の結晶性プロピレン-エチレンブロックまたはランダム共重合体、ポリブテン-1、エチレン-ブテン共重合体およびこれらの重合体のブレンド物等である。特にエチレン-ブテン共重合体による、エチレン30重量部以下の結晶性プロピレン-エチレンブロック共重合体を用いると機械的強度の特に優れたものが得られる。

次に本発明に用いられるゴム状物質の内合成ゴムとしては、エチレン-プロピレンゴム、スチレン-ブタジエンゴム、イソブレンゴム等の弾性を有する合成樹脂である。天然ゴムとしては特に限

る自重部、とかななる材料樹脂組成物である、一般に知られる、重量比を減すると、熱変形性が低下し成形性が悪くなり、特に衝撃強度が著しく低下する。しかし、本発明の様にポリオレフィンにタルク系充填材と合成ゴムまたは天然ゴムを配合することにより、熱変形性と衝撃強度を低下させることなく、ベースとなるポリオレフィンよりも、著しく成形収縮率が小さく、高い耐性、高い熱変形温度を有する組成物を得ることができる。ポリオレフィンに合成ゴムまたは天然ゴムを添加して衝撃強度を改良することは一般に行なわれているが、本発明の様に、ドリアーとは異なる阻礙剤を大量に添加した系に於ても大なる衝撃強度の改良効果があることは予想外であり、かつ合成ゴムまたは天然ゴムを使用する場合、衝撃強度が著しく改善されるのみならず、タルク系充填材を単独に充填した時より、更に成形収縮率を改良することは全く予想し得ないことであつた。

かくして本発明者等は、成形収縮率、耐性、衝

定された条件はない。

又、本発明に使用されるタルク系充填材としては、天然産の含水ケイ酸マグネシウムを粉砕したものである。その分子の結晶構造はパイロフィライト型三層構造を示して、タルクはこの構造が積み重なつたものであるが、特に結晶を単位層厚度迄まで微粉砕した半乾状のもので、沈降法にて測定した平均粒径が1〜10 $\mu$ のものが好ましい。又、タルク中には酸化鉄、アルミナ、酸化カルシウム等の不純物を含んでいて、これらはポリオレフィンの熱安定性を悪くするので、少ない方が望ましいが特に限定するものではない。

本発明の組成物は(a)ポリオレフィン89〜20重量部、(b)合成ゴムまたは天然ゴム1〜20重量部、(c)平均粒径1〜10 $\mu$ の粉末状タルク系充填材10〜60重量部、の割合で含むものである。好ましくは、(a)ポリオレフィン83〜35重量部、(b)合成ゴムまたは天然ゴム2〜15重量部、(c)平均粒径1〜8 $\mu$ の粉末状タルク系充填材15〜50重量部、の割合で含むものである。合成ゴム

または天然ゴムがこれより少ないと衝撃強度及び成形収縮率の改善効果が充分でなく、多すぎると剛性及び引張り強度が低下する。次にタルク系充填材の量がこれより少ないと成形収縮率及び剛性の改善効果が充分でなく、多すぎると衝撃強度及び引張り強度が低下し、成形性も悪くなる。タルクの平均粒径が10 $\mu$ 以上では成形収縮率及び剛性の改善効果が少なく、1 $\mu$ 以下では高比重が小さいので一般に使用される粒径域では成形が困難である。

本発明組成物を得る方法としては、ポリオレフィンと合成ゴムまたは天然ゴム及び粉末状タルク系充填材とを、例えばハンジューミキサー等の配合機で均一に混合し、この混合物をハンジューミキサー、スクリーン式押出機等の溶融配合機を用いて混練し、造粒装置により粒状にする等が挙げられるが、かならずしも上記方法に限定するものではない。尚、各成分の混合、混練に際しては酸化防止剤、紫外線吸収剤等の安定剤、滑剤、顔料等の添加剤を配合することも可能である。

本発明組成物の粒状成形材料は、一般の熱可塑性樹脂用の射出成形機で、適度と容易に成形できる。

次に実施例を示すが、本発明を何ら限定するものではない。尚、実施例中の数値の測定法について付記する。

MI	ASTM D1258-62T
成形収縮率	161 $\times$ 80 $\times$ 2mmシートを成形後 50 $^{\circ}$ C $\times$ 20hr状態調節 20 $^{\circ}$ Cにて長さを測定。
引張り強性及び伸び	ASTM D452-64T
曲げ剛性率	ASTM D747-63
シャルピー衝撃強度(-10 $^{\circ}$ C ノック付)	ASTM D256-56
デュポン衝撃強度(-10 $^{\circ}$ C)	JIS K671Bに準ずる。

#### 実施例-1

MI=3.0のポリブレンをベースとするエチレン-プロピレン共重合体粉末(三井東圧化学社製)：

商品登録名)三井ノブレンB J H H) 5.2.5 重量部、MI=4.2の粒状エチレン-プロピレン共重合体(以下EPRと略称する) 7.5 重量部、平均粒径6 $\mu$ のタルク40 重量部と必要量の酸化防止剤及び滑剤を添加し、ハンジューミキサーにて室温で均一に混合し、スクリーン型(40 $\mu$ メ)押出機にてペレット状物とした。この粒状組成物をプランジャー型射出成形機にて厚み2mmのシートを成形し、50 $^{\circ}$ C、20時間状態調節後20 $^{\circ}$ Cにて物性を測定した。

表-1

処 方	(重量部)		成形収縮率		剛性	YS	デュポン 衝撃強度
PP	EPR	タルク	クレ-炭カル	(%)	(%)	(%)	(kg $\cdot$ cm $\cdot$ sec $\cdot$ cm $\cdot$ sec)
実施例-1	52.5	7.5	40	—	—	0.8	19000 250 40
比較例-1	60	—	40	—	—	1.0	23000 270 5
"	2	100	—	—	—	1.6	12000 510 40
"	3	92.5	7.5	—	—	1.6	9000 260 100
"	4	52.5	7.5	—	40	1.4	14000 180 —
"	5	52.5	7.5	—	—	40	1.5 15000 170 —
註	●	クレ-炭カル	平均粒径: 8 $\mu$				
	●●	炭カル	平均粒径: 5 $\mu$				

表-1より、EPRとタルクを併用すると、成形収縮率を小さくし、曲げ剛性率が高く、しかも衝撃強度をベースポリマー並に保つことがわかる。又、無充填材として、タルクを添加すると、クレーや炭酸カルシウムを添加した時より成形収縮率及び曲げ剛性率の改善効果が著しく大きく、降伏点応力(以下YSと略称する)の低下が少ないことが判る。

#### 実施例-2, 3, 4, 5

実施例-1で用いたタルクの代りに、粒径の異なるタルクを用いた場合の物性を表-2に示した。尚、タルク40 重量部添加した時のタルク粒径と成形収縮率、曲げ剛性率、YSの関係を図に示した。

表-2

タルク平均粒径 ( $\mu$ )	成形収縮率 (%)	曲げ剛性率 (%)	YS (%)
実施例-2	1.3	0.8	21000 250
" 3	4.1	0.8	20000 240
" 1	6.0	0.8	19000 230
" 4	7.1	0.9	18000 220
" 5	8.3	1.1	16000 210
比較例-6	10.2	1.5	12000 170

表 4

実施例 1 で用いた EPR の代りに MI の異なる EPR を用いた場合の物性を表 5 に示した。

表 5

実施例	EPR MI (g/10min at 230°C)	成形収縮率 (%)	曲げ剛性率 (%)	デュポン 衝撃強度 (kgm/1/2")	YS (%)
実施例-6	1.08	0.8	—	—	—
7	4.2	0.8	19000	40	230
8	1.9	0.8	19000	40	230
9	0.7	0.8	18000	40	230

実施例 9, 10, 11, 12

MI = 8.0 のプロピレンをベースとするエチレンプロッタ共重合体粉末 (登録商標名: 三井ノーブレン: BJHH) に平均粒子径 6 μm のタルク 20 重量%, 及び MI = 4.2 の粒状 EPR 添加量を変化させて、実施例 1 と同様な方法で物性を測定し、表 4 に示した。

表 5

	処方 (重量%)		成形 収縮率	曲げ剛 性率	デュポン 衝撃強度	YS
	PP	タルク EPR	(%)	(%)	(kgm/1/2")	(%)
実施例-13	82.5	10 7.5	13	14000	60	280
"	14 72.5	20 7.5	115	16000	50	260
"	15 52.5	40 7.5	0.8	19000	40	230
"	16 32.5	60 7.5	0.6	21000	15	200

実施例 16

MI = 8.0 のプロピレンをベースとするエチレンプロッタ共重合体粉末 (登録商標名: 三井ノーブレン: BJHH) 43.5 重量%, MI = 0.35 の高密度ポリエチレン 12 重量%, MI = 4.2 の EPR 4.5 重量%, 平均粒子径 6 μm のタルク 40 重量% を実施例 1 と同様な方法で成形し物性を測定し表 6 に示した。

表 6

処方 (重量%)	成形収縮率	デュポン衝撃強度	シャルピー衝撃強度	曲げ剛性率	YS				
PP	PE	EPR	g/cm <sup>3</sup>	(%)	(kgm/cm <sup>2</sup> )	(%)	(%)		
実施例-16	43.5	12	4.5	40	0.9	35	60	16000	240
1	52.5	—	2.5	40	0.8	40	4.5	19000	230

実施例-17

MI=5.0の高密度ポリエチレン粉末52.5重量部、MI=4.2のEPR 7.5重量部、平均粒径6μmのタルク40重量部を実施例-1と同様な方法で成形し、物性を測定し表7に示した。

表-7

	処方(重量部)	成形 収縮率	シャルピー 衝撃強度	曲げ 率	YS
	PE EPR タルク (g)	(%)	(kg/cm <sup>2</sup> )	(%)	(kg)
実施例-17	52.5 7.5 40	0.9	18	15000	210
比較例-7	100 - -	1.7	22	9500	275

## 4. 図面の簡単な説明

タルク40重量部とエチレン・プロピレンタパー7.5重量部を添加したポリプロピレン系樹脂組成物において、第1図：タルク粒径と成形収縮率、第2図：曲げ率及び第3図：降伏点応力、の関係を例示する。

特許出願人 三井東洋化学株式会社  
代理人 弁理士 横田 昌  
代理人 弁理士 大井 昌 治

## 6. 前記以外の発明者および代理人

## (1) 発 明 者

\*\*\*タケ クバ  
広島県大竹市秋波4丁目6-9  
タケムラ ヤマ ユキ  
森多村 清 之

\*\*\*エヤグン\*\*\*ノチヨウ  
広島県佐伯郡大野町1605-3  
コ ダマ クニ オ  
児 玉 邦 雄

\*\*\*エヤグン\*\*\*ノチヨウ  
広島県佐伯郡大野町1605-3  
ササキ ナカ 1  
佐々木 健 世

## (2) 代 理 人

〒188 東京都保谷市泉町三丁目3番6号  
弁理士(6679) 大井 昌 治  
電話 0424-22-2498

図1 (a) (b) (c)

